

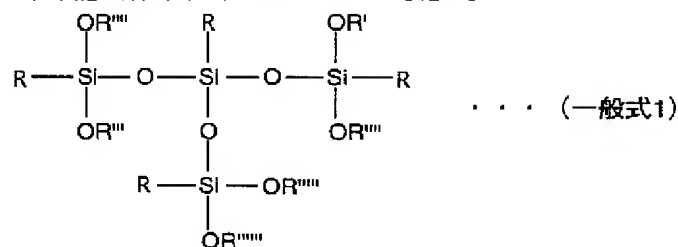
(11)特許出願公開番号  
特開2001-288333  
(P2001-288333A)

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00	A 4 F 2 0 4
B 2 9 C 39/10		B 2 9 C 39/10	4 J 0 0 2
C 0 8 G 59/32		C 0 8 G 59/32	4 J 0 3 5
59/40		59/40	4 J 0 3 6
77/04		77/04	4 M 1 0 9
審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 22 頁) 最終頁に続く			

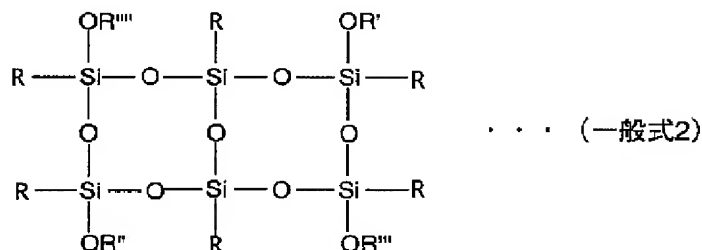
弁理士 高田 幸彦 (外1名)

(2) の

【化1】



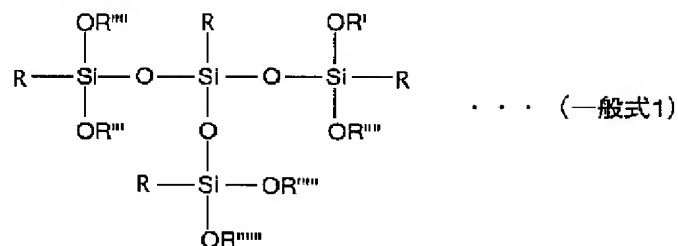
• • • (一般式2)



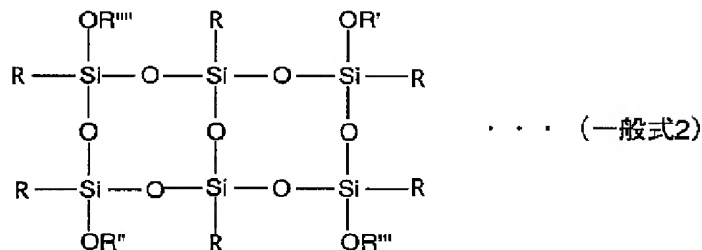
リカ、アルミナ、チタニア、ガラス、セラミック、Mn-Znフェライト複合体及びMn-Zn-Cuフェライト複合体の少なくとも1種の無機充填剤3 vol%以上とを含有する熱硬化性樹脂組成物からなり、該樹脂組成物の硬化物の体積固有抵抗が $1 \times 10^{14} \Omega \cdot \text{cm}$ 以上であることを特徴とするエポキシ樹脂複合材料。

【請求項2】エポキシ樹脂と、下記一般式（1）又は（2）の

【化3】



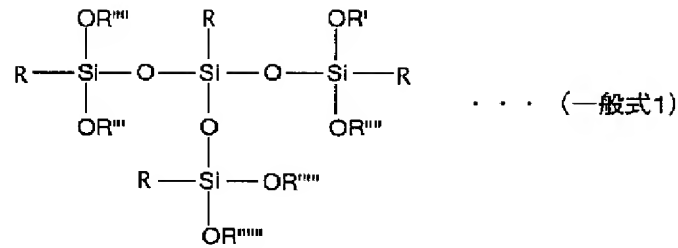
• • • (一般式2)



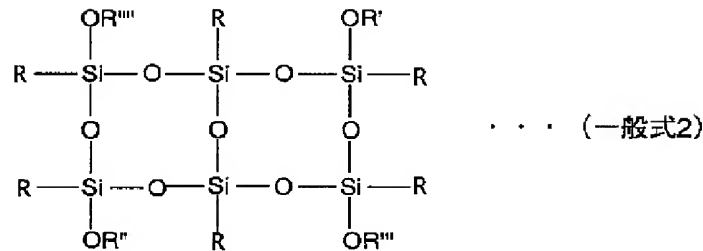
前記エポキシ樹脂の硬化剤と、比誘電率が1000以上で有る高誘電率の無機充填剤30vol%以上とを含有する熱硬化性樹脂組成物からなることを特徴とするエポキシ樹脂複合材料。

【請求項3】エポキシ樹脂と、下記一般式（1）又は（2）の

【化5】



【化6】

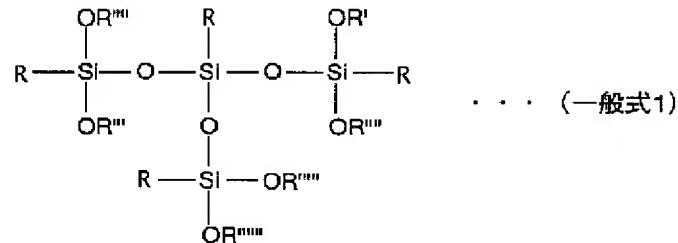


の有機ケイ素化合物（ただし、Rは前記エポキシ樹脂の硬化剤と付加反応を起こす官能基を含む有機基であり、かつ、R'、R''、R'''、R''''、R'''''およびR''''''はSiR<sub>3</sub>O<sub>3/2</sub>を繰り返しの単位として0～3個有する含ケイ素基である。前記SiR<sub>3</sub>O<sub>3/2</sub>が0個の場合、R'、R''、R'''、R''''、R'''''およびR''''''はH、CH<sub>3</sub>又はC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>である。）と、前記エポキシ樹脂の硬化剤と、熱伝導率が30W/m・K以上である

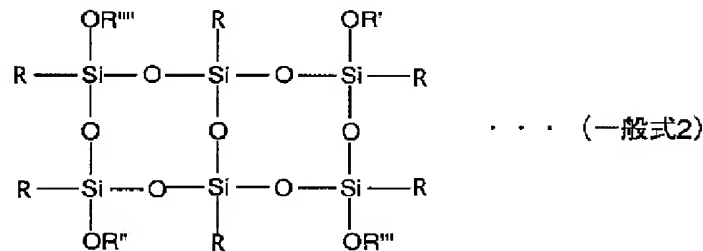
高熱伝導の無機充填剤30vol%以上とを含有する熱硬化性樹脂組成物からなり、該樹脂組成物の硬化物の体積抵抗が1×10<sup>14</sup>Ω・cm以上であることを特徴とするエポキシ樹脂複合材料。

【請求項4】エポキシ樹脂と、下記一般式（1）又は（2）の

【化7】



【化8】



の有機ケイ素化合物（ただし、Rは前記エポキシ樹脂の硬化剤と付加反応を起こす官能基を含む有機基であり、かつ、R'、R''、R'''、R''''、R'''''およびR''''''はSiR<sub>3</sub>O<sub>3/2</sub>を繰り返しの単位として0～3個有する含ケイ素基である。前記SiR<sub>3</sub>O<sub>3/2</sub>が0個の場合、R'、R''、R'''、R''''、R'''''およびR''''''はH、CH<sub>3</sub>及びC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>のいずれかである。）と、1種類以上の軟磁性粒子30vol%以上とを含有する熱硬化性樹脂組成物からなり、該樹脂組成物の硬化物の複素比透磁率の虚数部の損失ピークが100MHz以上、損失ピ

ーク周波数以上の周波数領域において、複素比透磁率の実数部に対する虚数部の比が1.0以上、及び体積固有抵抗が1×10<sup>14</sup>Ω・cm以上であることを特徴とするエポキシ樹脂複合材料。

【請求項5】半導体素子の少なくとも一部が、請求項1～4のいずれかに記載のエポキシ樹脂複合材料である絶縁材料により被覆、又は封止することを特徴とする樹脂封止材料。

【請求項6】導体層と絶縁層とが交互に積層され、前記絶縁層の少なくとも一部が請求項1～4のいずれかに記

載のエポキシ樹脂複合材料からなることを特徴とするプリント配線板。

【請求項7】半導体素子の少なくとも一部が、請求項1～4のいずれかに記載のエポキシ樹脂複合材料である絶縁材料により被覆、又は封止されていることを特徴とする樹脂封止型半導体装置。

【請求項8】数の半導体素子の少なくとも一部が、請求項1～4のいずれかに記載のエポキシ樹脂複合材料である絶縁材料により被覆、又は封止されていることを特徴とするマルチチップモジュール。

【請求項9】電子機器の少なくとも一部が、請求項1～4のいずれかに記載のエポキシ樹脂複合材料からなる絶縁材料によって絶縁されていることを特徴とする電子機器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、新規なエポキシ樹脂複合材料およびそれを用いた各種装置に係り、好ましくは半導体装置及び半導体部品の実装分野を対象にした高誘電率、高熱伝導性、高透磁率等の高機能性を有し、且つ高温力学特性の優れたエポキシ樹脂複合材料及びそれを用いた装置に関する。

【0002】

【従来の技術】プリント基板、モジュール基板、パッケージ用基板の絶縁材料、及び封止材料に高誘電率、高熱伝導性、高透磁率等の機能を保有させるのに、エポキシ樹脂材料中に金属または／及び無機フィラを高充填する方法が適用されているが、次のことが課題となっている。

【0003】樹脂材料を高誘電率化する方法として特開平6-172618号公報にチタン酸バリウム等の無機フィラを高充填化する方法がある。また、樹脂材料を高熱伝導化する方法として特開平5-117543号公報にアルミまたはアルミナシリカ系酸化物を高充填化する方法が、特開平6-333964号公報に金属粉末を高充填化する方法がある。更に、樹脂材料を高透磁率化する方法として特開平11-67519号公報にフェライト系粉末を高充填化する方法がある。

【0004】しかしながら、樹脂中に上記無機フィラ及び金属粉末を高充填化すると、無機フィラ及び金属粉末と樹脂との相溶性が悪いため、樹脂硬化の際空隙が発生しやすい。また、無機フィラ及び金属粉末と樹脂との界面の接着性が低いため、界面での剥離が発生し易い。そのため無機フィラ及び金属粉末を高充填化した樹脂複合材料を絶縁材料として使用する際に絶縁耐圧またはリーク電流の観点から信頼性に乏しいという問題がある。また、エポキシ樹脂そのものの高温物性に依存するため、高温での力学物性の低下が信頼性を保持する観点から重要な課題となっている。

【0005】樹脂の高温における力学的特性を向上させ

るために、特開平7-331069号公報および特開平7-331070号公報に金属酸化物ゾルをポリアミドイミド樹脂に分散させる方法が、特開平8-100107号公報に金属アルコキシドをエポキシ樹脂に添加し縮重合させる方法、特開平9-216938号公報にフェノール樹脂中で金属アルコキシドを膨潤させた後、縮重合させる方法が、特開平9-291131号公報に金属アルコキシドをポリウレタン樹脂に添加しゾルゲル法により縮合する方法が報告されている。しかしながら、これらの方法では高温での力学的特性は向上するもののガラス転移点は明瞭であり、ガラス転移点より高温側での効果は望めない。

【0006】特開平10-298405号公報にエポキシ基が含まれているシランアルコキシドをエポキシ樹脂に添加し、熱硬化させる方法が報告されている。熱硬化後の樹脂はガラス転移点がほぼ消失しており高温での力学的特性は大きく向上している。しかしながら、この方法では硬化の際に副生成物として水の発生を伴い、複合材料の界面での膨れが生じるという問題がある。また、この技術では、温度変化により複合材料の界面で発生する膨れとクラックの発生の防止については考慮されていない。

【0007】一方、金属酸化物等の無機フィラ及び金属粉を含有するエポキシ樹脂複合材料は、高誘電率、高熱伝導率あるいは高透磁率などの機能性付与と信頼性を同時に確保するため、半導体チップと基板あるいは配線基板の表面層あるいは層間材料等として使用される際、マイクロボイド等の微小隙間が発生しない程度の流動性が必要であり、また、硬化時にガス化する副生成物の発生が極力小さいことが要求される。

【0008】更に、上記樹脂材料を用いた半導体装置、プリント基板等は、温度の変化により生じる割れとクラックを防止するため、以下に記すことが重要となる。半導体装置用では、200℃以上の温度での半田リフロー後と-50～150℃の熱サイクルに対して半導体装置が正しく動作するように、複合材料中の種々の界面で熱応力が生じにくく、膨れとクラックが入りにくいものが求められる。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】従来の技術では、エポキシ樹脂材料の弾性率は、200℃以上の高温では室温と比較して、1桁以上低下し、線膨張係数は数倍の大きさとなる。プリント基板、モジュール基板、パッケージ用基板の表面層あるいは層間絶縁層、及びテープキャリア用の接着材料へ適用し、その表面にワイヤボンディング又はCCBを用いた表面実装を行う場合、200℃以上の高温にさらされるため、LSIチップと電気的接続に問題が生じる場合がある。

【0010】本発明の目的は、高温での耐熱性が高く、更に高温での弾性率が高く、又、特定の無機充填剤との組み合わせにより特に半導体素子との熱膨張係数の室温

と高温での差が小さいため、クラックや剥離が発生しにくいエポキシ樹脂複合材料とそれを用いた樹脂封止材料、樹脂封止型半導体装置及び多層配線板を提供することにある。

#### 【0011】

【課題を解決するための手段】本発明は、加熱すると硬化する樹脂を熱硬化性接着材料として用いられ、その熱硬化性樹脂材料が、エポキシ樹脂と、前記エポキシ樹脂の硬化剤と付加反応を起こす官能基を含むケイ素化合物オリゴマーからなる材料である。その製法として、エポキシ樹脂、前記エポキシ樹脂の硬化剤と付加反応を起こす官能基を含むケイ素化合物オリゴマー、及び水を含む混合物に、所定の条件で熱処理を施すステップと、前記熱処理が施された前記混合物に前記硬化剤を添加するステップとを含むものである。

【0012】この樹脂は素材の分子量と反応の制御により液状、固体いずれも可能であり。無機フィラや金属粉との親和性が高いため容易にこれらと混合でき、熱伝導性の機能性を付与することができる。また、硬化物は熱力学的に安定なSiO<sub>2</sub>の耐熱骨格を有するシラン系オリゴマーが分子レベルで均一に分散しかつ、エポキシ樹脂と共有結合した構造となるため、硬化物はT<sub>g</sub>温度以上での温度での弾性率の低下を抑え、T<sub>g</sub>以上の温度での熱膨張係数の増大を抑えた材料特性を有する。また、耐熱性が高いため、金属、セラミックまたは樹脂などの基材とともに用いて複合材を作製しても、基材と樹脂との界面で膨れが生じたり、成形品にクラックや剥離が生じたりすることがない。さらに、金属やセラミックと親和性の高い官能基を含むため、これらの材料との接着性に優れる。

【0013】また、各種金属粉、無機フィラとの親和性が高いためこれらを添加して、誘電率、体積固有抵抗、熱伝導率と高透磁率を付与した絶縁材料としても著しい効果を示す。このことは樹脂本来が有する高温力学物性とシラノールのような化学親和性との相乗効果によるものと考えられる。上記実装用の接着材料に適用した場合、高温での物性低下がほとんどなく、上記の加熱、加圧下でも高い物性を維持することができる。

【0014】更に、エポキシ樹脂複合材料と基材との間に温度変化によって発生する応力の低減と高温で外部か

らの力の負荷によりエポキシ樹脂が変形しない高い弾性率を確保することが重要である。応力の低減には室温におけるエポキシ樹脂と基材との間の熱膨張を合わせるだけでなく、温度変化に対する熱膨張係数の変化を抑えることが重要である。特に、ガラス転移温度(T<sub>g</sub>)以上の温度での熱膨張係数の増大を抑えることが重要である。

【0015】一方、半田リフロー、環境温度変化に対する信頼性を高めるためには、吸湿させた状態で膨れとクラックを抑える必要がある。T<sub>g</sub>を越えた高温でのフリップチップボンディングやワイヤボンディング等による金属—金属間の接続の際、プリント基板に部分的に圧力をかける時の基板の変形を抑える必要がある。そのためにエポキシ樹脂材料のT<sub>g</sub>以上の温度での弾性率の低下を抑えることが重要である。この温度変化に対するこれらの特性変化を抑えるのに通常は樹脂に数μm～10nmのフィラを添加する方法が取られている。しかし、この方法では樹脂の物性変化そのものは抑えられないため、フィラを添加した樹脂の複合材料としての物性の温度依存性は樹脂単独の時と同様な変化をする。樹脂の温度に対する物性変化を抑えるには、温度変化に対して物性変化の小さい物質を分子レベルで生成させることが重要と考えられる。

【0016】本発明は、高密度実装用エポキシ樹脂複合材料の樹脂成分に力学特性的に安定なSiO<sub>2</sub>骨格を分子レベルで均一に生成させ、そのSiO<sub>2</sub>骨格の末端に樹脂と共有結合する官能基を付与することにより樹脂と結合させ、樹脂硬化物のT<sub>g</sub>以上の温度での弾性率の低下を抑え、T<sub>g</sub>以上の温度での熱膨張係数の増大を抑えたエポキシ樹脂複合材料にある。

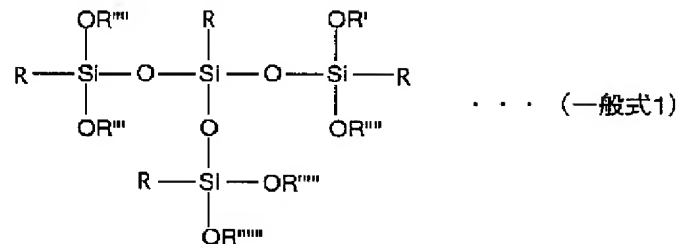
【0017】また、本発明では複合材料に用いる樹脂作製の際、硬化剤を添加する前に予め熱処理を行っており、この熱処理の際に水等のガスの発生は終了させているため、複合材料硬化時のガスの発生は抑制でき、エポキシ樹脂複合材料の硬化の際に膨れ及び剥離は発生しない。

【0018】本発明の要旨は以下のとおりである。

【0019】樹脂材料が、エポキシ樹脂と、下記一般式(1)又は(2)の

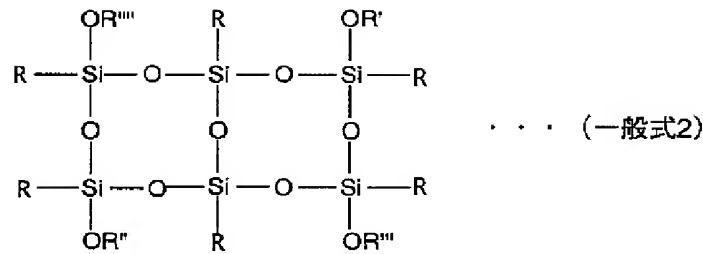
【0020】

【化9】



#### 【0021】

【化10】



の有機ケイ素化合物（ただし、Rは前記エポキシ樹脂の硬化剤と付加反応を起こす官能基を含む有機基であり、R'、R''、R'''、R''''、R'''''およびR''''''はSiR<sub>3</sub>O<sub>3/2</sub>を繰り返しの単位として0～3個有する含ケイ素基である。前記SiR<sub>3</sub>O<sub>3/2</sub>が0個の場合、R'、R''、R'''、R''''、R'''''およびR''''''はH、CH<sub>3</sub>又はC<sub>2</sub>H<sub>5</sub>である。）と、前記エポキシ樹脂の硬化剤と、比誘電率が1000以上の高誘電率フィラを40vol%以上とを含有する熱硬化性樹脂組成物からなり、該樹脂組成物の硬化物の体積固有抵抗が1×10<sup>14</sup>Ωcm以上であること(a)、或いは、前記熱硬化性樹脂組成物に熱伝導率が30w/m以上の高熱伝導率フィラを40vol%以上含有し、該樹脂組成物の硬化物の体積固有抵抗が1×10<sup>14</sup>Ωcm以上であること(b)、或いは、前記熱硬化性樹脂組成物に軟磁性フィラを30vol%以上とを含有し、該樹脂組成物の硬化物の複素比透磁率の虚数部の損失ピークが100MHz以上、損失ピーク周波数以上の周波数領域において複素比透磁率の実数部に対する虚数部の比が1.0以上、及び体積固有抵抗が1×10<sup>14</sup>Ωcm以上であることを特徴とするエポキシ樹脂複合材料(c)である。

【0022】本発明に使用されるエポキシ樹脂材料を加熱して硬化した樹脂は、耐熱性が高く、室温と高温における熱膨張係数の差が小さいので、熱応力が生じにくく、クラックが入りにくい。また、硬化する際に、水やアルコールなどの副生成物の発生がほとんどなく、接着性に寄与の大きいシラノール基を含むため、金属、セラミックまたは樹脂などの基材とともに用いて複合材を製造しても、基材と樹脂との界面で膨れが生じたり、成形品にクラックや剥離が生じたりすることがない。

【0023】また、このエポキシ樹脂が硬化した時の<sup>29</sup>Si-NMRの化学シフトの-53ppmから-72ppmのピークの積分値は、-40ppmから-52ppmのピークの積分値の1倍から50倍である。これは、ケイ素化合物がSi-O-Siの結合を形成して分子量が増加したことを示す。このエポキシ樹脂材料は、エポキシ樹脂モノマーが相溶性のよい溶媒として存在するので、有機ケイ素化合物はこのエポキシ樹脂材料に均一に分布する。また適当なエポキシ樹脂を選ぶことにより、樹脂材料は溶液から固体として作製が可能である。特に、液状で低粘度の樹脂材料は金属酸化物等の無機フィラを高充填することが可能なため、成形性や硬化物の耐

熱性を損なうことなく複合化して高誘電率、高熱伝導率、高透磁率の機能を付与することができる。また、固体の場合でも熔融時の粘度が低いため、加熱溶融させて上記の無機フィラを容易に高充填することができる。

【0024】エポキシ樹脂材料は、エポキシ樹脂、有機ケイ素化合物（ただし、Rは前記硬化剤と付加反応を起こす官能基を含む有機基であり、かつ、R'およびR''はメチル基またはエチル基である）、および、水を含む混合物は、60℃～160℃で1～10時間の熱処理を施し、熱処理が施された混合物にエポキシ樹脂の硬化剤を添加して得られる。ここで、水は、有機ケイ素化合物に対してモル比で3～0.02倍量が好ましい。

【0025】本発明では、エポキシ樹脂に硬化剤を添加する前に、エポキシ樹脂、特定の有機ケイ素化合物、及び水を含む混合物に熱処理を施すので、本発明のエポキシ樹脂複合材料を硬化させた樹脂は、耐熱性が高く、高温における弾性率の変化が少ないので、熱応力が生じにくく、クラックが入りにくい。更に、高温でも高弾性率を維持できるため外部からの力の負荷によるエポキシ樹脂材料の変形の発生が抑えられる。また、硬化する際に、水やアルコールなどの副生成物の発生はほとんどないことから、金属、セラミックまたは樹脂などの基材とともに用いて複合材を製造しても、基材と樹脂との界面で膨れが生じたり、成形品にクラックや剥離が生じたりすることがない。

【0026】エポキシ樹脂としては、特に制限されるものではなく、公知のものが使用できる。例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂、グリシジルアミン型エポキシ樹脂、脂環型エポキシ樹脂などが挙げられる。エポキシ樹脂を用いる場合には、その硬化剤として通常一般に用いられている公知の化合物を用いることができる。例えば、カルボン酸無水物、第1級、第2級、第3級のアミン系化合物、第4級アンモニウム塩、ジシアンジアミド、三沸化ホウ素-アミンコンプレックス、有機酸ヒドラジド、イミダゾール系化合物、フェノール、クレゾール、キシリノールを基本骨格とする化合物及びその誘導体と重縮合物、チオコール系化合物等があり、目的と用途に応じ適宜選択できる。

【0027】また、公知の硬化促進剤、離型剤、カップリング剤、着色剤、可塑剤、希釈剤、可とう化剤、各種のゴム状物、光感光剤等を目的と用途に応じて添加して

用いることができる。

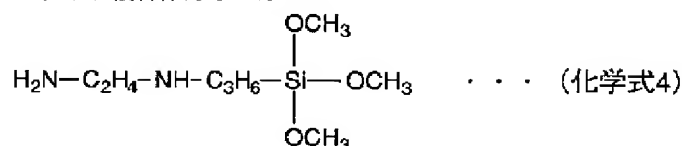
【0028】本発明に使用される上記のエポキシ樹脂材料は無機フィラや金属粉との親和性に優れるシラノール基を有することから、フィラを含有させる場合、界面での密着性が高いためさらに特徴的な優れた信頼性を示す。フィラを含有させる場合、高誘電率を付与するためのフィラとしてはチタン酸バリウム、チタン酸鉛マグネシウム、高熱伝導性を付与するためのフィラとしては銀粉、金粉、銅粉、ニッケル粉等の金属フィラ、シリカ、アルミナ、チタニア、ガラス、セラミック等の無機フィラがある。そして、高透磁率を付与するための金属酸化物系フィラとしてはMn-Znフェライト複合体あるいはMn-

Zn-Cuフェライト複合体等があげられる。また、物性を損なわない範囲で2種以上のフィラあるいは金属フィラと無機フィラを混合して用いてもよい。フィラの平均粒径は0.1~100 $\mu$ mが使用できるが好ましくは1から20 $\mu$ mがよい。フィラの配合量は30~98vol%、好ましくは70~90vol%の範囲が望ましい。

【0029】また、本発明において、ケイ素化合物の例として、次の(化学式4)~(化学式13)の官能基を有するケイ素化合物がある。

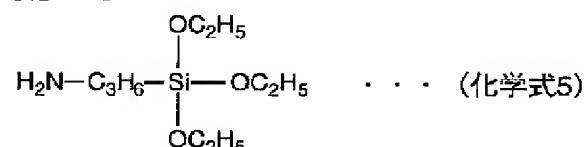
【0030】

【化11】



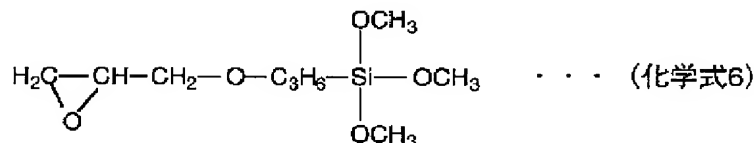
【0031】

【化12】



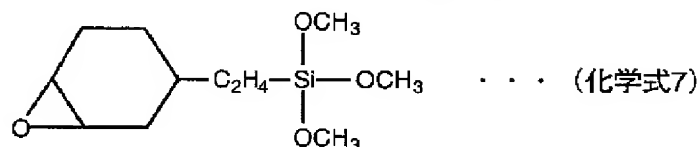
【0032】

【化13】



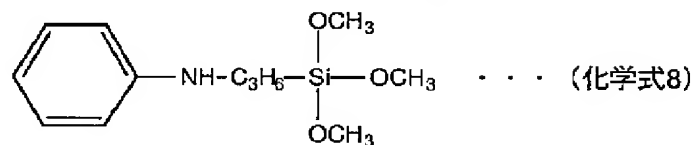
【0033】

【化14】



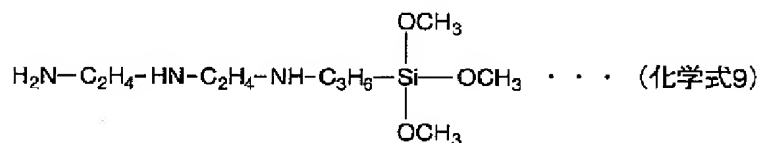
【0034】

【化15】



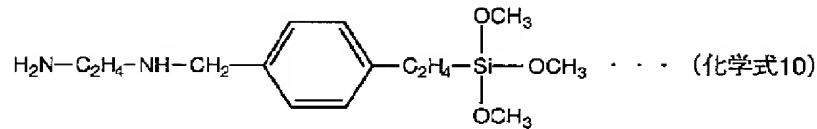
【0035】

【化16】



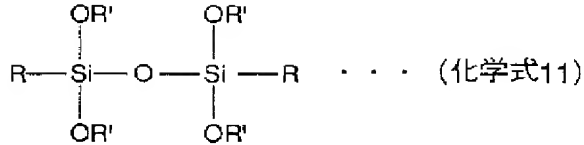
【0036】

【化17】



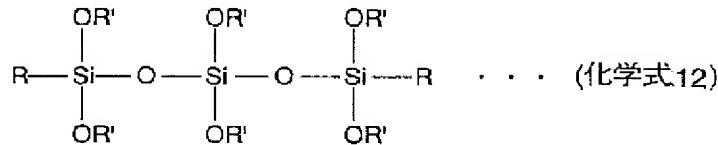
【0037】

【化18】



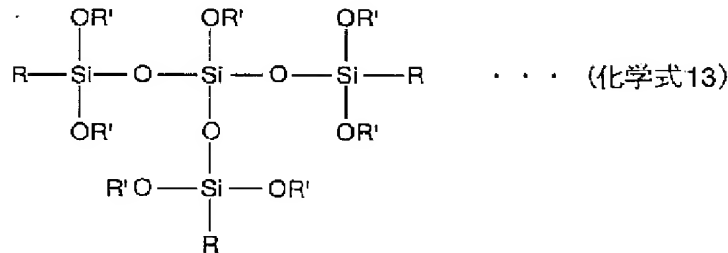
【0038】

【化19】



【0039】

【化20】



【0040】本発明の発明者らは、硬化反応の際に水やアルコールなどの副生成物の発生を極力抑えた熱硬化性樹脂材料を得るには、硬化剤が含まれない、エポキシ樹脂、有機ケイ素化合物及び水の混合物の状態、予め熱処理を施すことが有効であることを見出した。ここで、有機ケイ素化合物は樹脂の硬化剤と付加反応を起こす官能基を有するものである。

【0041】このような熱処理を施すと、 $\text{SiO}_2$ を基本骨格とする有機けい素化合物の分散性が高く、かつナノメートルレベルの多量体が生成する。この有機けい素化合物の多量体は、エポキシ樹脂との相溶性に優れており、硬化前の熱硬化性樹脂組成物は室温（25℃）で低粘度、かつ透明である。特に、金属酸化物や金属粉等の無機フィラを多量に混合することが可能であり、かつ混合後も室温で流動性を保つことができる。即ち、チタン酸バリウムのような高誘電率フィラの高充填により高誘電率、アルミナのような高熱伝導率のフィラの高充填により高熱伝導率、さらにNi-Znフェライト混合フィラの高充填による高透磁率等の機能がエポキシ樹脂材料の成形性およびその硬化物の耐熱性を損なわずに実現する。従って、配線基板の表面層、層間の絶縁層、封止材料、ダイボンディング材料、接着材料として適用した場合、高誘電率、高熱伝導率、高透磁率の機能を必要とされる絶縁層への適用が可能となり実装系の機能が飛躍的

に向上する。

【0042】前述の本発明のエポキシ樹脂複合材料を接着材料として用いることは、金属、セラミックス、有機基板の各種材料との接着性に優れ、また、耐熱性が高く、温度変化による物性の変化が小さいため、製造プロセス中の温度変化、及び、使用する際に生じる温度変化に対して、高い信頼性を有する。

【0043】更に、本発明材は、液体で使用できる他、フィルムとして加工することも容易なため、ハンドリング性の高い材料である。そのため、半導体装置のキャリア用テープ、基板、リードフレームの接着材料、配線基板や配線シートの接着材料として使用した場合には半導体装置および配線基板は高い信頼性が得られる。従って本発明は、半導体及び半導体部品の実装分野における金属-有機材料、有機材料-有機材料、有機材料-無機材料、金属材料-金属材料間の接着において高い効果がある。

【0044】半導体素子が実装される配線基板やテープキャリアの表面には半導体との電気的接続のためワイヤボンディングやCCB（Controlled Collapse Bonding）される際、高温で圧接される。パッド部の真下にある接着材料層がその加熱と圧力により変形する問題がある。また、半導体がリードフレームに搭載される際もその接着に使用される高熱伝導性接着材料も同様な加熱加圧下



で行われ、温度サイクルやプレッシャークックの信頼性評価時にクラックや剥離が発生する問題があるが、本発明では、セラミックスや金属、樹脂基板等の異種材料への接着性が優れ、耐熱性がよく、高温での弾性率の変化が少ないため、クラックや剥離が発生しにくい接着材料が得られる。

【0045】又、本発明により、高温での耐熱性が高く、更に高温での弾性率が高く、特定の無機充填剤との組み合わせによって熱膨張係数の室温と高温での差が小さいため、クラックや剥離が発生しにくく、樹脂材料の硬化の際に膨れ発生の原因となる界面で水等の副生成物によるガス発生が無く、かつ無機フィラや金属との親和性に優れるため無機フィラや金属粉が容易に混合でき、高誘電率あるいは高熱伝導率あるいは高透磁率の機能を有するエポキシ樹脂複合材料が得られる。

【0046】

【発明の実施の形態】（実施例1）本実施例では、ケイ素化合物として3-グリシドキシトリメトキシシラン（チッソ（株）製）を、加水分解触媒としてジブチルジラウリン酸錫（和光純薬工業（株）製）を、エポキシ樹脂としてエポコートEP806（（株）油化シェル製）を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド（和光純薬工業（株）製）を、及び硬化促進剤としてキュアゾールCN（四国化成（株）製）を用いる。金属フィラとして、平均粒径 $5\mu\text{m}$ の銀粉、平均粒径 $5\mu\text{m}$ の銅粉、平均粒径 $1.5\mu\text{m}$ のチタン酸バリウム、無機フィラとして平均粒径 $1\mu\text{m}$ のシリカ、平均粒径 $5\mu\text{m}$ のアルミナ、平均粒径 $5\mu\text{m}$ のNi-Zn-Cuフェライトを用いた。

【0047】本実施例の金属又は無機フィラを含有した熱硬化性樹脂材料の製造方法について説明する。

【0048】（1）3-グリシドキシトリメトキシシラン236gに、水を23.6gとジブチルジラウリン酸錫2.4gをそれぞれ加えて攪拌した後、1日以上室温で放置する。

（2）251gのエポキシ樹脂エポコートEP806に（1）の混合液を徐々に加えて攪拌する。

（3）（2）の混合液に対して、 $120^{\circ}\text{C}$ で4時間の熱処理をする。

（4）熱処理後、室温まで冷却してから、（3）の溶液に対して金属フィラとして、平均粒径 $5\mu\text{m}$ の球状銀粉を重量で88%（40体積%）、平均粒径 $5\mu\text{m}$ の球状銅粉を重量で86%（40体積%）、無機フィラとして平均粒径 $1.5\mu\text{m}$ のチタン酸バリウムを重量で88%（60体積%）、平均粒径 $1\mu\text{m}$ のシリカを重量で77%（60体積%）、平均粒径 $5\mu\text{m}$ のアルミナを重量で85%（60体積%）、平均粒径 $5\mu\text{m}$ のNi-Zn-Cuフェライトを重量で77%（40体積%）になるようにそれぞれ加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを19.8gとキュアゾール

CNを2.0g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0049】（4）でできた混合物が本実施例の金属又は無機フィラを含有した熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、金属又は無機フィラを含む硬化した絶縁材料を得ることができる。

【0050】次に本発明の絶縁材料の誘電率、体積固有抵抗、熱伝導率と透磁率について説明する。（4）の溶液を成形型枠に流し込み、 $80^{\circ}\text{C}$ と $180^{\circ}\text{C}$ で4時間ずつ加熱することにより、高誘電率材料含有熱硬化性樹脂板を得る。この樹脂板の比誘電率測定は主電極外形50mm、ガード電極内径52mm、外形80mm、対向電極外形80mmとし、LCRメータ（HP4248A）を用いて周波数100kHzで行った。また、体積固有抵抗についても同じサンプルと装置を用いて行った。熱伝導率測定は直径50mmの円盤状試験片を作製し、厚さ方向の値に対して試験片の表裏の温度差と、定常状態において貫通する熱量を熱貫流センサーで測定して算出する装置（ダイナテック社製C-MATIC）で行った。複素比透磁率の測定は樹脂板を外形7mm、内径3mm、厚さ2mm、4mmのトロイダル形状に仕上げた。ネットワークアナライザー（ヒュレットパッカード社製8720C）と同軸エアラインから構成される測定系により、試料の複素比透磁率を測定する場合には、自由空間の透磁率が1となるように校正した後、同軸エアラインに試料を挿入し、2つのポートを使用してS11、S21の2つのパラメータを測定し、それから計算により複素比透磁率を求めた。それらの結果を表1に示す。又、絶縁材料について $^{29}\text{Si-NMR}$ の測定から得られる積分値の比（ $-53\text{ppm} \sim -75\text{ppm}$ の吸収の積分値）/（ $-40\text{ppm} \sim -52\text{ppm}$ の吸収の積分値）と（一般式1）における $R'$ 、 $R''$ 、 $R'''$ および $R''''$ の（ $\text{SiRO}_{3/2}$ ）の繰返し単位も表1に併記する。

【0051】この結果は以下の通りであった。金属フィラとして、銀粉、銅粉及び無機フィラとしてチタン酸バリウムを添加した熱硬化性樹脂材料は100kHzでの比誘電率が25以上の値を有した。樹脂単体での比誘電率が4であったのに対して6倍以上の値が得られ、高い誘電率を有する複合材料が得られた。また、金属フィラとして、銀粉、銅粉及び無機フィラとしてアルミナを添加した熱硬化性樹脂材料の熱伝導率は $3.5\text{W/m K}$ 以上の値を有した。樹脂単体での熱伝導率が $0.2\text{W/m K}$ であったのに対して17倍以上の値が得られ、高い熱伝導率を有する複合材料が得られた。Ni-Zn-Cuフェライトを添加した熱硬化性樹脂材料は50MHz～40GHzの周波数領域で複素比透磁率の実数部に対する虚数部の比が1.0以上の値を有し、良好な電波吸収特性を示した。更に、本実施例で用いた全ての熱硬化性樹脂材料は絶縁材料として必要不可欠な特性である高い体積固有抵抗を有している。これは本実施例において用いた熱硬化性樹脂材料が母材となるエポキシ樹脂と比較して、低粘

度化したことと無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が高かったことが影響している。

【 0 0 5 2 】

【 表 1 】

表 1

実施例1						
エポキシ樹脂	エピコートEP806 251g					
硬化剤	ジシアンジアミド 19.8g					
ケイ素化合物	3-グリシドキシトリメトキシシラン 236g					
水の添加量	23.6g					
硬化促進剤	キュアゾールCN 2.0g					
金属又は無機フィラ	銀	銅	チタン酸バリウム	シリカ	アルミナ	Ni-Zn-Cuフェライト
フィラ充填量	40%	40%	60%	60%	50%	40%
熱処理温度	150℃					
熱処理時間	4 h					
比誘電率 (100 kHz)	29	28	39	4	4	4
熱伝導率	4.2	4.2	0.6	1.3	3.5	0.6
複素比透磁率 (200GHz)	---	---	---	---	---	1.5
体積固有抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )	$1 \times 10^{15}$	$2 \times 10^{15}$	$4 \times 10^{15}$	$6 \times 10^{15}$	$7 \times 10^{15}$	$6 \times 10^{15}$
Si-NMR積分値の比	5.9					
【化1】における R', R'', R''', R''', R''''', R''''''の ( $\text{SiRO}_{3/2}$ ) の平均 繰り返し単位	0.8					

【 0 0 5 3 】 ( 実施例 2 ) 本実施例では、高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料について以下説明する。本実施例では、ケイ素化合物として3-グリシドキシトリメトキシシラン (チッソ (株) 製) を、加水分解触媒としてジブチルジラウリン酸錫 (和光純薬工業 (株) 製) を、エポキシ樹脂としてエピコートEP828 ( (株) 油化シェル製) を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド (和光純薬工業 (株) 製) を、及び硬化促進剤としてキュアゾールCN (四国化成 (株) 製) を用いる。高誘電率フィラとして、比誘電率4000の (100kHz) 平均粒径 $1.5\mu\text{m}$ の $\text{BaTiO}_3$ を用いた。

【 0 0 5 4 】 本実施例の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料の製造方法について説明する。

( 1 ) 3-グリシドキシトリメトキシシラン236gに、水を23.6gとジブチルジラウリン酸錫2.4gをそれぞれ加えて攪拌した後、1日以上室温で放置する。

( 2 ) 285gのエポキシ樹脂エピコートEP828に ( 1 ) の混合液を徐々に加えて攪拌する。

( 3 ) ( 2 ) の混合液に対して、150℃で2時間の熱処理をする。

( 4 ) 熱処理後、室温まで冷却してから、( 3 ) の溶液に対して比誘電率4000の (100kHz) 平均粒径 $1.5\mu\text{m}$ の $\text{BaTiO}_3$ を重量で88% (60体積%) になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを19.8gとキュアゾールCNを2.0g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

( 4 ) でできた混合物が本実施例の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、高誘電率を有する硬化した絶縁材料を得ることができる。

【 0 0 5 5 】 次に本発明の絶縁材料の誘電率と体積固有抵抗について説明する。( 4 ) の溶液を成形型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより、高誘電率材料含有熱硬化性樹脂板を得る。この樹脂板の比誘電率測定は主電極外形50mm、ガード電極内径52mm、外形80mm、対向電極外形80mmとし、LCRメータ (HP4248A) を用いて周波数100kHzで行った。また、体積固有抵抗についても同じサンプルと装置を用いて行った。それらの結果を表1に示す。又、絶縁材料について $^{29}\text{Si}$ -NMRの測定から得られる積分値の比 ( ( - 5 3 ppm ~ - 7 5 ppm の吸収の積分値 ) / ( - 4 0 ppm ~ - 5 2 ppm の吸収の積分値 ) ) と ( 一般式 1 ) における R' , R'' , R''' および R'''' の (  $\text{SiRO}_{3/2}$  ) の繰り返し単位も表2に併記する。

【 0 0 5 6 】 この結果、本高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料は高い体積固有抵抗を損なうことなく高い誘電率を有している。これは本実施例において用いた熱硬化性樹脂材料が母材となるエポキシ樹脂と比較して、低粘度化したことと無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が高かったことが影響している。

【 0 0 5 7 】

【 表 2 】

表 2

	実施例2	比較例 1
エポキシ樹脂	エピコートEP828 285g	
硬化剤	ジシアンジアミド 19.8g	ジシアンジアミド 11.9 g
ケイ素化合物	3-グリシドキシプロピル トリメトキシシラン 236g	-----
水の添加量	23.6g	-----
硬化促進剤	キュアゾールCN 2.0g	キュアゾールCN 1.2g
熱処理温度	150℃	-----
熱処理時間	2h	-----
比誘電率 (100 k Hz)	38	36
体積固有抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )	$2 \times 10^{15}$	$5 \times 10^7$
Si-NMR積分値の比	6.9	-----
【化1】における R', R'', R''', R''', R''', R''', R''', (SiR <sub>3</sub> /2) の平均 繰返し単位	0.9	-----

【0058】(比較例1) 比較例1では、エポキシ樹脂としてエピコートEP828((株)油化シェル製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド(和光純薬工業(株)製)を、及び硬化促進剤としてキュアゾールCN(四国化成(株)製)を用いる。高誘電率フィラとして、比誘電率4000の(100kHz)平均粒径1.5 $\mu\text{m}$ のBaTiO<sub>3</sub>を用いた。

【0059】比較例1の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料は以下のように作製する。

【0060】285gのエポキシ樹脂エピコートEP828に比誘電率4000の(100kHz)平均粒径1.5 $\mu\text{m}$ のBaTiO<sub>3</sub>を重量で88%(60体積%)になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを11.9gとキュアゾールCNを1.2g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0061】上記混合物が比較例1の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、高誘電率を有する硬化した絶縁材料を得ることができる。

【0062】次に比較例1の材料の誘電率と体積固有抵抗について説明する。上記混合物を成形型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより樹脂板を得る。この樹脂板の比誘電率測定と体積固有抵抗については実施例2と同様に行った。それらの結果を表2に示す。

【0063】この結果、比較例1の樹脂材料は高い誘電率を有しているものの体積固有抵抗は低い値となった。この原因としてエポキシ樹脂の粘度が高く、フィラとの混合性があることと、無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が低かったことが影響している。

【0064】(実施例3) 本実施例では高誘電率材料含

有熱硬化性ペースト材料について以下に説明する。本実施例では、ケイ素化合物として3-グリシドキシトリメトキシシラン(チッソ(株)製)を、加水分解触媒としてジブチルジラウリン酸錫(和光純薬工業(株)製)を、エポキシ樹脂としてエピコートEP806((株)油化シェル製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド(和光純薬工業(株)製)を、及び硬化促進剤としてキュアゾールCN(四国化成(株)製)を用いる。高誘電率フィラとして、比誘電率4000の(100kHz)平均粒径1.5 $\mu\text{m}$ のBaTiO<sub>3</sub>を用いた。

【0065】本実施例の高誘電率材料含有熱硬化性ペースト材料の製造方法について説明する。

【0066】(1) 3-グリシドキシトリメトキシシラン236gに、水を23.6gとジブチルジラウリン酸錫2.4gをそれぞれ加えて攪拌した後、1日以上室温で放置する。

(2) 251gのエポキシ樹脂エピコートEP806に(1)の混合液を徐々に加えて攪拌する。

(3) (2)の混合液に対して、120℃で2時間の熱処理をする。

(4) 熱処理後、室温まで冷却してから、(3)の溶液に対して比誘電率4000の(100kHz)平均粒径1.5 $\mu\text{m}$ のBaTiO<sub>3</sub>を重量で88%(60体積%)になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを19.8gとキュアゾールCNを2.0g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0067】(4)でできた混合物が本実施例の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、高誘電率を有する硬化した絶縁材料を得ることができる。

【0068】次に本発明の絶縁材料の誘電率と体積固有抵抗について説明する。(4)の溶液を成形型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより、高誘電率材料含有熱硬化性樹脂板を得る。この樹脂板の比誘電率測定は主電極外形50mm、ガード電極内径52mm、外形80mm、対向電極外形80mmとし、LCRメータ(HP4248A)を用いて周波数100kHzで行った。また、体積固有抵抗についても同じサンプルと装置を用いて行った。それらの結果を表3に示す。又、絶縁材料について<sup>29</sup>Si-NMRの測定から得られる積分値の比(−53ppm〜−75ppmの吸収の積分値)／

(−40ppm〜−52ppmの吸収の積分値))と(一般式1)におけるR', R'', R'''およびR''''の(SiR<sub>3/2</sub>)の繰返し単位も表3に併記する。

【0069】この結果、本高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料は高い体積固有抵抗を損なうことなく高い誘電率を有している。これは本実施例において用いた熱硬化性樹脂材料が母材となるエポキシ樹脂と比較して、低粘度化したことと無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が高かったことが影響している。

【0070】

【表3】

表 3

	実施例3	比較例2
エポキシ樹脂	エピコートEP806 251g	
硬化剤	ジシアンジアミド 19.8g	ジシアンジアミド 11.9g
ケイ素化合物	3-グリシドキシプロピル トリメトキシシラン 236g	-----
水の添加量	23.6g	-----
硬化促進剤	キュアゾールCN 2.0g	キュアゾールCN 1.2g
熱処理温度	120℃	-----
熱処理時間	2 h	-----
比誘電率 (100 kHz)	39	37
体積固有抵抗 (Ω cm)	$4 \times 10^{15}$	$1 \times 10^8$
Si-NMR積分値の比	5.9	-----
【化1】における R', R'', R''', R''', R''''', R''''''の (SiR <sub>3/2</sub> )の平均 繰返し単位	0.8	-----

【0071】(比較例2)比較例2では、エポキシ樹脂としてエピコートEP806((株)油化シェル製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド(和光純薬工業(株)製)を、及び硬化促進剤としてキュアゾールCN(四国化成(株)製)を用いる。高誘電率フィラとして、比誘電率4000の(100kHz)平均粒径1.5μmのBaTiO<sub>3</sub>を用いた。

【0072】比較例2の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料は以下のように作製する。

【0073】251gのエポキシ樹脂エピコートEP806に比誘電率4000の(100kHz)平均粒径1.5μmのBaTiO<sub>3</sub>を重量で88%(60体積%)になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを11.9gとキュアゾールCNを1.2g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0074】上記混合物が比較例1の高誘電率材料含有熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、高誘電率を有する硬化した絶縁材料を得ることができる。

【0075】次に比較例2の材料の誘電率と体積固有抵抗について説明する。上記混合物を成形型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより樹脂板を得る。この樹脂板の比誘電率測定と体積固有抵抗については実施例3と同様に行った。それらの結果を表3に示す。

【0076】この結果、比較例2の樹脂材料は高い誘電率を有しているものの体積固有抵抗は低い値となった。この原因としてエポキシ樹脂の粘度が高く、フィラとの混合性があることと、無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が低かったことが影響している。

【0077】(実施例4)本実施例では高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂材料について以下に説明する。本実施例では、ケイ素化合物として3-グリシドキシトリメトキシシラン(チッソ(株)製)を、加水分解触媒としてジブチルジラウリン酸錫(和光純薬工業(株)製)を、エポキシ樹脂としてAER250((株)旭チバ製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド(和光純

薬工業（株）製）を、及び硬化促進剤として2E4MZ-CN（四国化成（株）製）を用いる。高熱伝導フィラとして、熱伝導率30W/mK 平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを用いた。

【0078】本実施例の高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂材料の製造方法について説明する。

【0079】（1）3-グリシドキシトリメトキシシラン236gに、水を23.6gとジブチルジラウリン酸錫2.4gをそれぞれ加えて攪拌した後、1日以上室温で放置する。

（2）278gのエポキシ樹脂AER250に（1）の混合液を徐々に加えて攪拌する。

（3）（2）の混合液に対して、150℃で2時間の熱処理をする。

（4）熱処理後、室温まで冷却してから、（3）の溶液に対して熱伝導率30W/mK 平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを重量で78%（50体積%）になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを19.8gとキュアゾールCNを2.0g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0080】（4）でできた混合物が本実施例の高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、高熱伝導を有する硬化した絶縁材料を得ることができる。

【0081】次に本発明の絶縁材料の熱伝導率と体積固有抵抗について説明する。（4）の溶液を成型型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより、高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂板を得る。この樹脂板の熱伝導率測定は直径50mmの円盤状試験片を作製し、厚さ方向の値に対して試験片の表裏の温度差と、定常状態において貫通する熱量を熱貫流センサーで測定して算出する装置（ダイナテック社製C-MATIC）で行った。また、体積固有抵抗については実施例1同様に行った。それらの結果を表4に示す。又、絶縁材料について<sup>29</sup>Si-NMRの測定から得られる積分値の比

（（-53ppm～-75ppmの吸収の積分値）／（-40ppm～-52ppmの吸収の積分値））と（一般式1）におけるR'，R''，R'''およびR''''の（SiRO<sub>3/2</sub>）の繰返し単位も表4に併記する。

【0082】この結果、本高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂材料は高い体積固有抵抗を損なうことなく高い熱伝導率を有している。これは本実施例において用いた熱硬化性樹脂材料が母材となるエポキシ樹脂と比較して、低粘度化したことと無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が高かったことが影響している。

【0083】

【表4】

表 4

	実施例4	比較例3
エポキシ樹脂	AER250	278g
硬化剤	ジシアンジアミド 19.8g	ジシアンジアミド 11.9g
ケイ素化合物	3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 236g	-----
水の添加量	23.6g	-----
硬化促進剤	キュアゾールCN 2.0g	キュアゾールCN 1.2g
熱処理温度	150℃	-----
熱処理時間	2h	-----
熱伝導率 (W/m K)	3.5	3.0
体積固有抵抗 ( $\Omega$ cm)	$4 \times 10^{15}$	$8 \times 10^7$
Si-NMR積分値の比	5.8	-----
【化1】における R', R'', R''', R''', R''''', R''''''の (SiRO <sub>3/2</sub> ) の平均 繰返し単位	0.8	-----

【0084】（比較例3）比較例3では、エポキシ樹脂としてAER250（（株）旭チバ製）を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド（和光純薬工業（株）製）を、及び硬化促進剤として2E4MZ-CN

（四国化成（株）製）を用いる。高熱伝導フィラとして、熱伝導率30W/mK 平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを用いた。

【0085】比較例3の高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂

材料は以下のように作製する。278 gのエポキシ樹脂AER250に熱伝導率30W/mK平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを重量で78% (50体積%) になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを11.9 gとキュアゾールCNを1.2g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0086】上記混合物が比較例3の高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、高熱伝導率を有する硬化した絶縁材料を得ることができる。

【0087】次に比較例3の材料の熱伝導率と体積固有抵抗について説明する。上記混合物を成型型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより樹脂板を得る。この樹脂板の熱伝導率測定と体積固有抵抗については実施例4と同様に行った。それらの結果を表4に示す。

【0088】この結果、比較例3の樹脂材料は高い熱伝導率を有しているものの体積固有抵抗は低い値となった。この原因としてエポキシ樹脂の粘度が高く、フィラとの混合性があることと、無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が低かったことが影響している。

【0089】(実施例5) 本実施例では高熱伝導材料含有熱硬化性封止材料について以下に説明する。本実施例では、ケイ素化合物として2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン(チッソ(株)製)を、加水分解触媒としてジブチルジラウリン酸錫(和光純薬工業(株)製)を、エポキシ樹脂としてEP806((株)油化シェル製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてMHACP(日立化成工業(株)製)を、及び硬化促進剤として2E4MZ-CN(四国化成(株)製)を用いる。高熱伝導フィラとして、熱伝導率30W/mK平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを用いた。

【0090】本実施例の高熱伝導材料含有熱硬化性封止材料の製造方法について説明する。

【0091】(1) 2-(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン246 gに、水を24.6 gとジブチルジラウリン酸錫2.4gをそれぞれ加えて攪拌した後、1日以上室温で放置する。

(2) 251 gのエポキシ樹脂EP806に(1)の混合液を徐々に加えて攪拌する。

(3) (2)の混合液に対して、150℃で4時間の熱処理をする。

(4) 熱処理後、室温まで冷却してから、(3)の溶液に対して熱伝導率30W/mK平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを重量で78% (50体積%) になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを19.8 gとキュアゾールCNを2.0g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0092】(4)でできた混合物が本実施例の高熱伝導材料含有熱硬化性封止材料である。これを加熱すれば、高熱伝導を有する硬化した封止材料を得ることができる。

【0093】次に本発明の封止材料の熱伝導率と体積固有抵抗について説明する。(4)の溶液を成型型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより、高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂板を得る。この樹脂板の熱伝導率測定は直径50mmの円盤状試験片を作製し、厚さ方向の値に対して試験片の表裏の温度差と、定常状態において貫通する熱量を熱貫流センサーで測定して算出する装置(ダイナテック社製C-MATIC)で行った。また、体積固有抵抗については実施例1同様に行った。それらの結果を表5に示す。又、絶縁材料について<sup>29</sup>Si-NMRの測定から得られる積分値の比(( $-53\text{ ppm} \sim -75\text{ ppm}$ の吸収の積分値)/( $-40\text{ ppm} \sim -52\text{ ppm}$ の吸収の積分値))と(一般式1)におけるR', R'', R'''およびR''''の( $\text{SiRO}_{3/2}$ )の繰り返し単位も表5に併記する。

【0094】この結果、本高熱伝導材料含有熱硬化性封止材料は高い体積固有抵抗を損なうことなく高い熱伝導率を有している。これは本実施例において用いた熱硬化性封止材料が母材となるエポキシ樹脂と比較して、低粘度化したことと無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が高かったことが影響している。

【0095】

【表5】

表 5

	実施例5	比較例4
エポキシ樹脂	エポコートEP806	251g
硬化剤	ジシアンジアミド 19.8g	ジシアンジアミド 11.9g
ケイ素化合物	2-(3,4-エポキシシクロヘキシル) エチルトリメトキシシラン 246g	-----
水の添加量	24.6g	-----
硬化促進剤	キュアゾールCN 2.0g	キュアゾールCN 1.2g
熱処理温度	150℃	-----
熱処理時間	4 h	-----
熱伝導率 (W/m K)	3.5	3.2
体積固有抵抗 ( $\Omega \cdot \text{cm}$ )	$6 \times 10^{15}$	$1 \times 10^8$
Si-NMR積分値の比	8.2	-----
【化1】における R', R'', R''', R''', R''''', R'''''' の (SiO <sub>3/2</sub> ) の平均 繰り返し単位	1.2	-----

【0096】(比較例4)比較例4では、エポキシ樹脂としてEP806(株)油化シェル製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド(和光純薬工業(株)製)を、及び硬化促進剤として2E4MZ-CN(四国化成(株)製)を用いる。高熱伝導フィラとして、熱伝導率30W/mK平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを用いた。

【0097】比較例4の高熱伝導材料含有熱硬化性樹脂材料は以下のように作製する。

【0098】251gのエポキシ樹脂AER250に熱伝導率30W/mK平均粒径10 $\mu$ mのアルミナを重量で78%(50体積%)になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを11.9gとキュアゾールCNを1.2g加えて同様に3本ロールを用いて混練する。

【0099】上記混合物が比較例1の高熱伝導材料含有熱硬化性封止材料である。これを加熱すれば、高熱伝導率を有する硬化した封止材料を得ることができる。

【0100】次に比較例4の材料の熱伝導率と体積固有抵抗について説明する。上記混合物を成型型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより樹脂板を得る。この樹脂板の熱伝導率測定と体積固有抵抗については実施例4同様に行った。それらの結果を表5に示す。

【0101】この結果、比較例4の封止材料は高い熱伝導率を有しているものの体積固有抵抗は低い値となった。この原因としてエポキシ樹脂の粘度が高く、フィラとの混合性があることと、無機材料と熱硬化性樹脂との接着性が低かったことが影響している。

【0102】(実施例6)本実施例では複素比透磁率の大きい金属粉を含有した熱硬化性樹脂材料について以下に説明する。本実施例では、ケイ素化合物として3-グリシドキシトリメトキシシラン(チッソ(株)製)を、加水分解触媒としてジブチルジラウリン酸錫(和光純薬工業(株)製)を、エポキシ樹脂としてエポコートEP828(株)油化シェル製)を、エポキシ樹脂の硬化剤としてジシアンジアミド(和光純薬工業(株)製)を、及び硬化促進剤としてキュアゾールCN(四国化成(株)製)を用いる。1GHz近傍の周波数領域で複素比透磁率の実数部に対する虚数部の比が1.0以上の値を有し、電波吸収特性の良好な金属粉として、扁平状のFe-Al-Si合金粉を50vol%混合した。

【0103】本実施例の熱硬化性樹脂複合材料の製造方法について説明する。

【0104】(1)3-グリシドキシトリメトキシシラン236gに、水を23.6gとジブチルジラウリン酸錫2.4gをそれぞれ加えて攪拌した後、1日以上室温で放置する。

(2)285gのエポキシ樹脂エポコートEP828に(1)の混合液を徐々に加えて攪拌する。

(3)(2)の混合液に対して、150℃で2時間の熱処理をする。

(4)熱処理後、室温まで冷却してから、(3)の溶液に対して複素比透磁率の実数部に対する虚数部の比が1.0以上の値を有する金属粉として、扁平状のFe-Al-Si合金粉を50vol%になるように加え、3本ロールを用いて混練する。次にその混合物にジシアンジアミドを19.8gとキュアゾールCNを2.0g加えて同様に3本ロールを用



いて混練する。

【0105】(4) でできた混合物が本実施例の複素比透磁率の大きい金属粉を含有した熱硬化性樹脂材料である。これを加熱すれば、複素比透磁率の大きい金属粉を含有した絶縁材料を得ることができる。

【0106】次に本発明の絶縁材料の複素比透磁率について説明する。(4) の溶液を成形型枠に流し込み、80℃と180℃で4時間ずつ加熱することにより、複素比透磁率の大きい金属粉を含有した熱硬化性樹脂板を得る。この樹脂板を外形：7-0.05mm、内径：3.04+0.06mm、厚さ：2mm、4mmのトロイダル形状に仕上げた。ネットワークアナライザ（HP製8720C）と同軸エアラインから構成される測定系により、試料の複素比透磁率を測定する場合には、自由空間の透磁率が1となるように校正した後、同軸エアラインに試料を挿入し、2つのポートを使用してS11、S21の2つのパラメータを測定し、それから計算により複素比透磁率を求めた。

【0107】また、試料の反射特性は、自由空間の反射係数が0になるように校正した後、試料を同軸エアラインに挿入し、試料の終端を金属面で短絡し、S11を測定し、反射係数を計算した。なお、測定周波数は50MHz〜20GHzである。また、体積固有抵抗については実施例1同様に行った。本発明の樹脂材料に対し、扁平状のFe-Al-Si合金粉を50vol%混合した複合材料の透磁率の周波数特性及び試料厚さが2.0mmの場合の電波吸収特性を調べた。図1は樹脂複合材料の複素比透磁率の周波数依存性を示す線図、及び図2は樹脂複合材料の電波吸収特性を示す線図である。なお、図2中における反射係数Sが小さいほど電波吸収量が多い。この場合、中心周波数は950MHzであるが、樹脂中の軟磁性材料の種類および混合量、及び樹脂混合体の厚さを変化させることにより、ある程度、吸収特性をコントロールすることができる。

【0108】(実施例7) 図3は本発明のハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料を用いたプリント配線基板の断面図である。図3では配線101、102はそれぞれ電源、グラウンドの対で、配線103、104は電源、グラウンド以外の通常の信号線の配線である。本実施例では、プリント配線基板材料100はハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料から製造されている。

【0109】本実施例によれば、電源、グラウンドの配線101、102の間に大きな対向面積を持たせる上、間に挟まれる誘電体（プリント配線基板材料100）の誘電率を大きくすることができるため、図4の回路図に示すように電源、グラウンドの配線101、102間に大きなコンデンサ110を形成することができる。コンデンサ110は雑音等の高い周波数の成分を除去するのに使用される。図5は本実施例の斜視図である。

【0110】図6は多層配線基板の断面図であり、電源、グラウンドの配線101、102に挟まれた部分にの

みハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料100から形成されていることを示す実施例である。本実施例によれば、電源、グラウンドの配線101、102の間に大きな対向面積を持たせる上、間に挟まれる誘電体（プリント配線基板材料100）の誘電率を大きくすることができるため、図4に示すように電源、グラウンドの配線101、102間に大きなコンデンサ110を形成することができる。その上、電源、グラウンド以外の通常の信号線の配線103、104の周囲のプリント配線基板材料120には誘電率の低いハイブリッド材料をガラス繊維に含浸させて形成したプリント配線基板材料である。そのため、電源、グラウンド以外の通常の信号線の配線103、104にかかる寄生容量を小さくすることができ、高い周波数の信号を通常の信号線の配線103、104に伝送でき電子回路の高速化が図れる。

【0111】図7は多層配線基板の作製フロー図である。本実施例に示す配線基板は図7に示すようにして通常の多層配線基板と同様な工程により形成される。ハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料からプリント配線基板材料100は製造されている。そのプリント配線基板材料100の両面に電源グラウンドの配線101、102を形成、誘電率の低いプリント配線基板材料120をその両面に接着し、スルーホールを形成して配線層間を接続して形成する。

【0112】以上述べたように、本実施例によれば、電源、グラウンドの配線101、102の間に大きな対向面積を持たせる上、間に挟まれる誘電体（プリント配線基板材料100）の誘電率を大きくすることができるため、図4に示すように電源、グラウンドの配線101、102間に大きなコンデンサ110を形成することができる。コンデンサ110は雑音等の高い周波数の成分を除去するのに使用される。

【0113】図8は図7の断面図であり、図に示すように通常の配線103をハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料から形成したプリント配線基板材料100を介してグラウンドの配線102と隣り合った配線層（電源の配線101と同じ配線層）に配線することにより、図9の回路図に示すように通常の配線103に接続するコンデンサ110を形成することができる。コンデンサ110は雑音等の高い周波数の成分を除去するのに使用される。図10は、本実施例の電源の配線101と同じ配線層のパターン図である。

【0114】図11は多層配線基板の断面図である。図に示すように1つの配線基板全面をハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料から形成したプリント配線基板材料100で形成するのではなく、一部だけを形成することも可能である。本実施例によれば、木目細かく局所的に誘電率を調整できるので、必要なところのコンデンサの容量を大きくでき、不



要な個所のコンデンサの容量（浮遊容量）を小さく抑えることができる。

【0115】図12はハイブリッド材料に透磁率の高いフィラを混入して透磁率を高めた材料から形成したプリント配線基板材料100でプリント配線を形成し、その中に配線109を通した実施例である。本実施例によれば、図13の回路図に示すように配線103の途中にインダクタンス112を形成することができる。なお、インダクタンス112は雑音等の高い周波数の成分を除去するのに使用される。配線パターンをループ状にして巻き数を増やすことによりインダクタンス112を大きくし、その効果を増大させることができる。

【0116】また、ハイブリッド材料に誘電率の高いフィラを混入して誘電率を高めた材料から形成したプリント配線基板材料100と組み合わせて使用することにより図14に示すようにインダクタンス112、コンデンサ110を形成することができる。これらインダクタンス112、コンデンサ110は雑音等の高い周波数の成分を除去するのに使用される。

【0117】図15はハイブリッド材料に熱伝導率の高いフィラを混入して熱伝導率を高めた材料をガラス繊維に含浸させて形成したプリント配線基板材料100を使用した実施例である。プリント配線基板材料100で形成したプリント基板上にパワー半導体素子104が実装され、プリント配線基板材料100で形成したプリント基板の下にはヒートシンク108が取り付けられている。また、プリント基板の上面と下面の間にはサーマルビア106が形成されている。サーマルビア106はスルーホール銅めっき層の熱伝導率を利用して熱を伝導させるためのものである。本実施例によれば、サーマルビア106による熱伝導に加えて、プリント配線基板材料100による熱伝導によりパワー半導体素子104の発熱をヒートシンク108に伝えることができ、熱抵抗を低減し、パワー半導体素子104の温度上昇、特にジャンクション温度の上昇を抑えることができる。

【0118】（実施例8）低粘度の熱硬化性樹脂材料に各種フィラを高充填することにより、高熱伝導、高誘電率などの諸特性を付与した本発明の樹脂材料を用いた電子機器、モジュール部品の実施例について説明する。

【0119】図16は、本発明の樹脂材料を用いた制御装置の断面図である。本図は、外部の検出装置からの信号を入力し、この信号をもとに演算装置で演算を行い、外部の動力装置に制御信号を出力する制御装置の断面図である。本制御装置は、プリント配線基板150の上に、受動部品154、オペアンプ155などから成る入力インターフェース回路、マイクロコンピュータ153、動力装置駆動用パワー半導体素子156を搭載し、前記プリント配線基板150を放熱板151に貼り付け、全体を金属またはプラスチック製のカバー152で覆うことにより構成される。発熱部品であるパワー半導

体素子156はパッケージの下面にヒートスプレッド157を備え、ここから熱を半田または熱伝導性接着剤158及びプリント配線基板150を介して放熱板151に放熱する。パワー半導体素子の発熱量が多い場合は放熱板にさらに放熱フィンを設けてもよい。また、図16ではパワー半導体素子のみ放熱対策を行っているが、マイクロコンピュータについても動作速度が速く発熱量が多い場合には同様に放熱板に熱を逃すことができる。

【0120】本実施例の電子機器の特徴は、低粘度の熱硬化性樹脂材料に高熱伝導度のフィラを高充填した本発明の高熱伝導樹脂を主原料としたプリント配線基板を使用する点にある。熱硬化性樹脂材料に熱伝導率が30W/mK以上の高熱伝導フィラ、例えばアルミナを60vol%以上高充填した場合、樹脂の熱伝導率は約4W/mKとなる。この高熱伝導樹脂を用いて、ガラスセラミック基板と同等で、通常のエポキシ樹脂製プリント配線基板の20倍もの高熱伝導度を有するプリント配線基板を作製することができる。このような高熱伝導プリント配線基板を使うと、発熱量の多い部品からの放熱のために従来低熱伝導プリント配線基板では必要であったサーマルビアが不要となり、プリント配線基板作製工程が短縮できだけでなく、この発熱部品の下にも信号線を通すことができるようになるため高密度実装が可能となる。また、セラミック基板に比べてプリント配線基板は低コストであるため、放熱性に優れ、且つ安価な電子機器を実現することができる。なお、本発明の高熱伝導樹脂をプリント配線基板150の他にも、パワー半導体パッケージとプリント配線基板との間の接着剤158に使用することによってさらに放熱効果を増すことも可能である。

【0121】以上はプリント配線基板または接着剤の高熱伝導性という観点から本実施例の電子機器の利点について説明したが、前述したように、充填するフィラの種類を変えることによって各種特性を有する樹脂を作ることができ、これを利用して本実施例の電子機器のプリント配線基板150に様々な特性を付加することが可能となる。

【0122】例えば、比誘電率が1000以上の高誘電率フィラ、例えばBaTiO<sub>3</sub>を60vol%以上高充填して比誘電率が100程度の高誘電率樹脂を作り、これをプリント配線基板150作製時に、内層の電源線とグランド線との間または信号線とグランド線との間に入れ込み、キャパシタを形成することによって、マイクロコンピュータのバイパスコンデンサや、入力インターフェース部のローパスフィルタ用コンデンサなどを基板に内蔵して部品数を削減することができる。また、高透磁率フィラを高充填した高透磁率樹脂を同様にプリント配線基板に入れ込みインダクタを形成することで、電子機器の外部への高周波電流を低減するフィルタをつくり、EMI (Electromagnetic Interference) 対策を施すことができる。前述の

高熱伝導プリント配線基板に、高誘電率樹脂、高透磁率樹脂を入れ込み、これら三つの特性を同時に満たすプリント配線基板を用いて、放熱対策やEMI対策が容易で、且つ部品数の少ない小型、低コストの電子機器を製造することも可能である。

【0123】図17は、本発明の樹脂材料を用いたモジュール部品の断面図である。本モジュール部品は、リードフレームの金属ベース160の上に、ベアチップ163を複数搭載し、ベアチップからリードフレームのピン161あるいはベアチップ間をアルミ線または金線165でワイヤボンディングして、全体をトランスファーモールド実装することによって構成される。

【0124】本実施例では、本発明の高熱伝導樹脂材料を用いてモジュール部品をトランスファーモールド実装する点にある。これにより放熱性に優れたモジュール部品を作製することができる。パッケージだけでなく、ベアチップ163とリードフレームの金属ベース160との間の接着剤164に本発明の高熱伝導樹脂材料を用いることによってさらに放熱効果を増すことも可能である。

【0125】図18は、図16の電子機器をトランスファーモールド実装によってコネクタと一体成形したコネクタ一体型電子機器の断面図である。リードフレームの金属ベース160に、プリント配線基板150を貼り付け、これにマイクロコンピュータ153、動力装置駆動用パワー半導体素子156、受動部品154等を搭載し配線を行う。プリント配線基板150とコネクタ端子168の間は、アルミ線または金線165でワイヤボンディングする。最後に全体をトランスファーモールド実装することによってコネクタ一体型電子機器を製造する。トランスファーモールド実装で電子機器をコネクタと一体成形することで製造工程が短縮でき、且つカバー等も不要になるため電子機器製造コストを低減することができる。

【0126】さらに本実施例の特徴は、プリント配線基板150及びトランスファーモールド実装用の樹脂162に、本発明の高熱伝導樹脂材料を使用する点にある。高コストのセラミック基板の代わりに、これと同等の放熱性を有するプリント配線基板を使うことでさらに電子機器を低コストで製造することが可能となる。また、動力装置駆動用パワー半導体素子156のヒートスプレッド157とプリント配線基板150の間の接着や、図示していないが、プリント配線基板150とリードフレームの金属ベース160の間の接着に、本発明の高熱伝導樹脂材料を主原料とする接着剤を使用しても良い。さらに、プリント配線基板150に、高誘電率、高透磁率などの諸特性を付加したのを使い、部品数を削減することによって、本実施例のコネクタ一体型電子機器をさらに小型化、低コスト化できることも前述した通りである。

【0127】（実施例9）高誘電率の多層回路板を用いたBGAについて説明する。

【0128】実施例2で作製したBaTiO<sub>3</sub>（チタン酸バリウム、比誘電率=4000）を60重量%添加したワニスを用いてEガラスクロス（日東紡、厚さ=0.05mm）に含浸塗工して、樹脂含量40重量%のプリプレグを得た。得られたプリプレグの両面に銅箔（日本電解、厚さ=0.035mm）を設置して、加熱加圧プレスにより両面銅張積層板を得た。成形条件は130℃/30分+200℃/60分、3MPaとした。この両面銅に所定の回路を形成して、さらに上下に通常のFR-4のプリプレグ及び銅箔（日本電解、厚さ=0.012mm）を設置して、加熱加圧プレスにより4層多層積層板を得た。成形条件は130℃/30分+170℃/90分、2MPaとした。得られた多層積層板に所定の箇所にドリルで穴を開け、さらに無電解銅めっきによりスルーホールを形成して層間の電氣的接続を図った。最後に最外層両面の回路を形成して目的とする4層多層回路板を得た。

【0129】得られた多層回路板にダイボンディング剤（日立化成工業、EN4000）でチップを固定して、180℃/60分硬化後、金ワイヤでボンディングして、チップと多層回路板との電氣的接続を行った。さらに封止材料（日立化成工業、CEL-9200）でチップ搭載側に対して片面トランスファーモールドを行った。モールド条件は180℃/90s、7MPaとした。さらにモールド側と反対側にはんだボール（千住金属、Sn-Ag-Cu）を所定量設置して、リフロー工程（260℃）により実装基板と電氣接続するための外部端子を形成してBGAパッケージを得た。

【0130】得られたBGAは高誘電率の絶縁層を有する多層回路板を用いることにより、高周波動作における耐ノイズ特性に優れており、1GHz動作周波数における同時切り替えノイズが最大0.5Vであった。

【0131】（比較例5）比較例5として高誘電率材であるチタン酸バリウムを用いないで実施例9と同様な方法で作製した多層回路板を用いたBGAについて、1GHz動作周波数における同時切り替えノイズを調べたところ最大2V発生し、高周波動作における耐ノイズ特性が劣っていた。

【0132】（実施例10）高熱伝導率の封止材料を用いたMCPについて説明する。実施例5で作製したAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>（アルミナ、熱伝導率=35W/mK）を78重量%添加した封止材料を用いたMCPを作製した。すなわち、銅リードフレームにダイボンディング剤（日立化成工業、EN4032）を用いてチップを3個搭載し、それぞれをワイヤボンディングにより、リードフレームと電氣的に接続した。その後実施例5で作製高熱伝導封止材を用いて、トランスファーモールドにより、全体を封止して、リードフレームを切断加工して、MCPを得た。得られたMCPは高熱伝導性の封止材料で被覆されているため、高出力のパワーチップを搭載してもパッケージの温度上昇が低かった。例えば20Wのパワートランジスタを搭載した

パッケージにおいてもチップ上昇温度は30℃であった。

【0133】(比較例6) 比較例6として高熱伝導材であるアルミナを用いないで実施例10と同様な方法で作製したMCPについて、20Wのパワートランジスタを搭載したパッケージのチップ上昇温度は60℃であった。従って高熱伝導材を用いていないため放熱性劣る。

【0134】

【発明の効果】本発明によれば、高温での耐熱性が高く、更に高温での弾性率が高く、又、特定の無機充填剤との組み合わせにより特に半導体素子との熱膨張係数の室温と高温での差が小さいため、クラックや剥離が発生しにくいエポキシ樹脂複合材料が得られ、更にそれを絶縁材として用いることにより信頼性の高い樹脂封止材料、樹脂封止型半導体装置及び多層配線板が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例5の樹脂複合材料の複素比透磁率の周波数依存性を示す線図。

【図2】実施例5の樹脂複合材料の電波吸収特性を示す線図。

【図3】実施例7の多層配線基板の断面図。

【図4】実施例7の多層配線基板の電気回路図。

【図5】実施例7の多層配線基板の鳥瞰図。

【図6】実施例7の多層配線基板の断面図。

【図7】実施例7の多層配線基板の作製フロー図。

【図8】実施例7の多層配線基板の断面図。

【図9】実施例7の多層配線基板の電気回路図。

【図10】実施例7の多層配線基板の電気回路パターン図。

【図11】実施例7の多層配線基板の断面図。

【図12】実施例7の多層配線基板の断面図。

【図13】実施例7の多層配線基板の電気回路図。

【図14】実施例7の多層配線基板の電気回路図。

【図15】実施例7の半導体装置の断面図。

【図16】実施例8の制御装置の断面図。

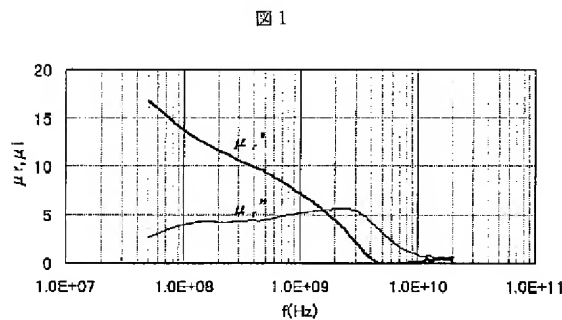
【図17】実施例8のモジュール部品の断面図。

【図18】実施例8のコネクター一体型電子機器の断面図。

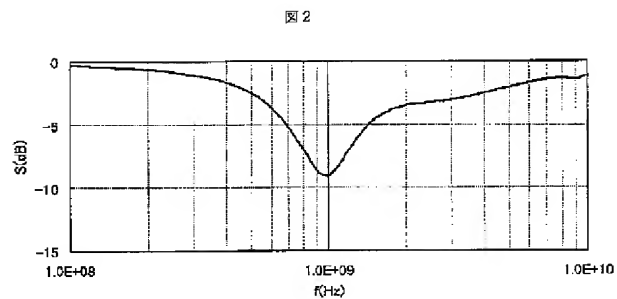
【符号の説明】

100、120... プリント配線基板材料、101、102、103、104、109... 配線、104... パワー半導体素子、106... サーマルビア、108... ヒートシンク、110... コンデンサ、112... インダクタンス、150... プリント配線基板、151... 放熱板、158... 接着剤。

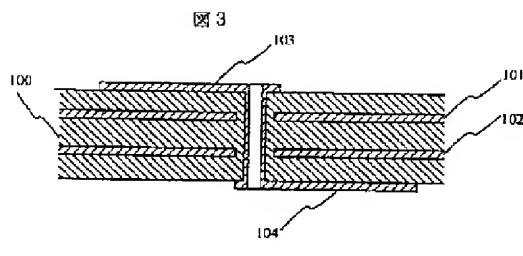
【図1】



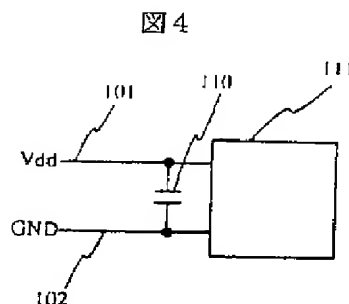
【図2】



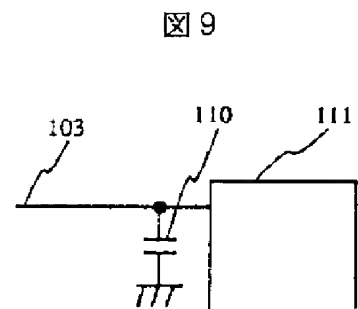
【図3】



【図4】

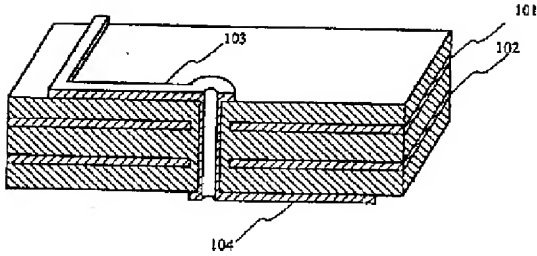


【図9】



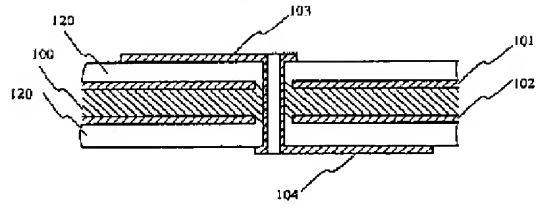
【图5】

图5



【图6】

图6

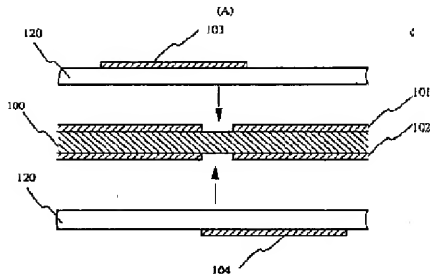


【图13】

图13

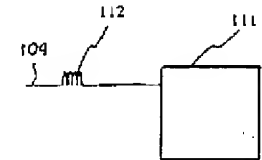
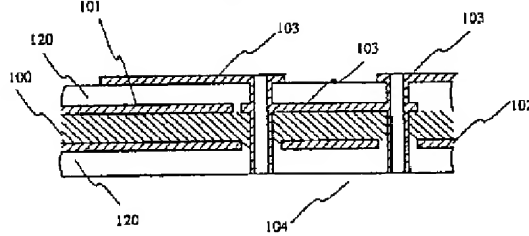
【图7】

图7



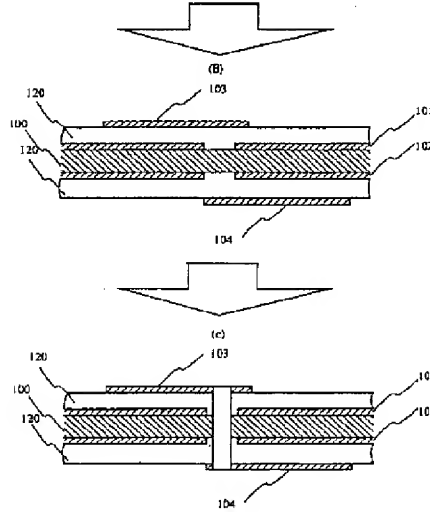
【图8】

图8



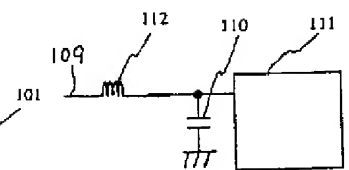
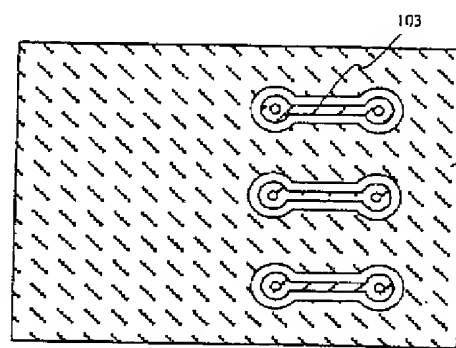
【图10】

图10



【图14】

图14

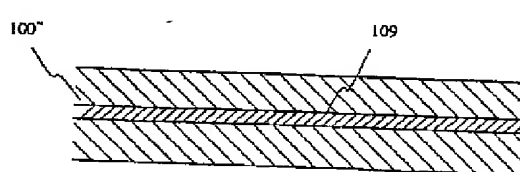
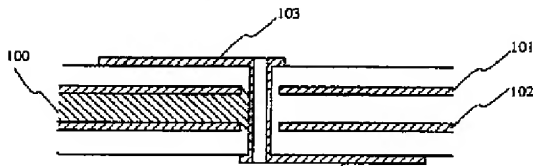


【图12】

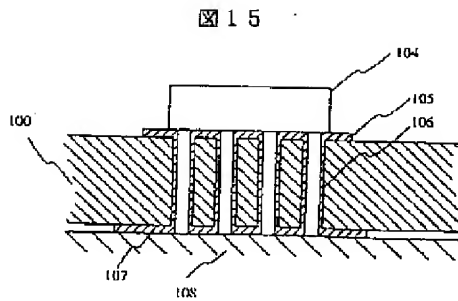
图12

【图11】

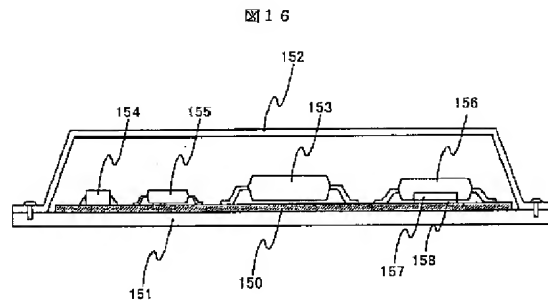
图11



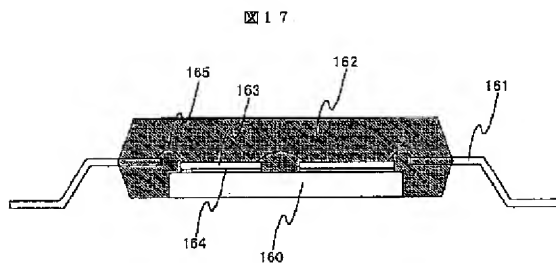
【図15】



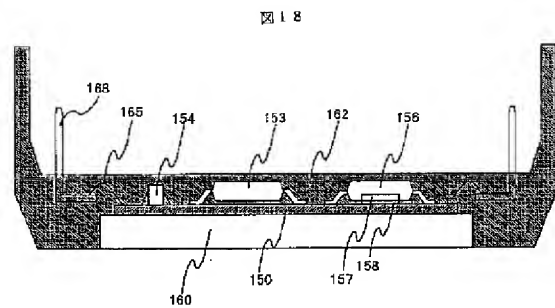
【図16】



【図17】



【図18】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テームド (参考)

C 0 8 K 3/00

C 0 8 K 3/00

C 0 8 L 5/00

C 0 8 L 5/00

H 0 1 L 23/29

B 2 9 K 63:00

23/31

H 0 1 L 23/30

R

// B 2 9 K 63:00

(72)発明者 永井 晃

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

(72)発明者 藤枝 正

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

(72)発明者 金川 信康

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

(72)発明者 櫻井 康平

茨城県日立市大みか町七丁目1番1号 株式会社日立製作所日立研究所内

(72)発明者 林原 年男

茨城県ひたちなか市大字高場2520番地 株式会社日立製作所自動車機器グループ内

(72)発明者 渡部 満

茨城県ひたちなか市大字高場2520番地 株式会社日立製作所自動車機器グループ内

F ターム(参考) 4F204 AA39 AB03 AG03 AH36 AM32  
EA03 EB01 EE03 EE06 EF27  
EK13  
4J002 CD02W CD05W CD06W CD13W  
CP05X CP09X DA077 DA087  
DE117 DE137 DE147 DE187  
DJ017 DL007 EF006 EJ016  
EN026 EN136 ER006 ER026  
EU116 FD017 FD146 GF00  
GQ05  
4J035 BA11 BA12 CA061 CA111  
CA19N CA191 EA01 EB02  
LA05 LB20  
4J036 AA01 AA05 AD08 AF06 AH04  
AJ05 AK17 DA01 DB06 DB15  
DC02 DC19 DC31 DC35 DC41  
DD01 GA21 JA07 JA08  
4M109 AA01 EA02 EB01 EB12 EB13  
EB18 EC03 EC05 EC06 EC07  
EC20



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **2001288333 A**(43) Date of publication of application: **16.10.01**

(51) Int. Cl.

**C08L 63/00**  
**B29C 39/10**  
**C08G 59/32**  
**C08G 59/40**  
**C08G 77/04**  
**C08K 3/00**  
**C08L 5/00**  
**H01L 23/29**  
**H01L 23/31**  
**// B29K 63:00**

(21) Application number: **2000104032**(22) Date of filing: **05.04.00**(71) Applicant: **HITACHI LTD**

(72) Inventor: **SATSUU YUUICHI**  
**TAKAHASHI AKIO**  
**NAGAI AKIRA**  
**KANEKAWA NOBUYASU**  
**SAKURAI KOHEI**  
**HAYASHIBARA TOSHIO**  
**WATABE MITSURU**  
**FUJIEDA TADASHI**

**(54) EPOXY RESIN COMPOSITE MATERIAL AND  
 DEVICE USING THE SAME**

(57) Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain an epoxy resin composite material having high heat resistance and high modulus of elasticity at a high temperature and scarcely causing a cracking and an exfoliating because having small difference in coefficient of thermal expansion especially from a semiconductor element between a room temperature and the high temperature by using a specific inorganic filler as combination and a resin sealing material, a resin-sealed semiconductor device and a multilayer printed circuit board using the composite material.

**SOLUTION:** This epoxy resin composite material

and the various kind of uses thereof are characterized in that the composite material is composed of a thermosetting resin composition comprising a epoxy resin, a specific organosilicon compound represented by general formulae (1) or (2) (wherein, Rs are each an organic group containing a functional group capable of being subjected to addition reaction with a curing agent for the epoxy resin; R', R'', R''', R'''' and R''''' are each a silicon-containing group having 0-3 SiRO<sub>3/2</sub> as a recurring unit; and the R', R'', R''', R'''' and R''''' are each H, CH<sub>3</sub> or C<sub>2</sub>H<sub>5</sub> when the number of SiRO<sub>3/2</sub> is 0), a curing agent for the epoxy resin and the specific inorganic filler.

COPYRIGHT: (C)2001,JPO